

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 11-135132

(43)Date of publication of application : 21.05.1999

(51)Int.Cl.

H01M 4/86

H01M 8/10

(21)Application number : 09-295545

(71)Applicant : TOSHIBA CORP

(22)Date of filing : 28.10.1997

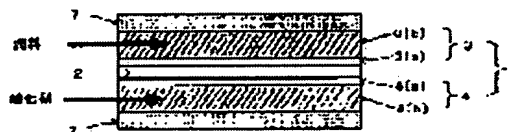
(72)Inventor : KOGAMI TAJI  
SAITO KAZUO  
TOMOSAWA HIROSHI  
UENO SANJI

## (54) SOLID POLYMER ELECTROLYTE FUEL CELL

## (57)Abstract:

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To provide a solid polymer electrolyte fuel cell which is capable of quickly, safely removing excess water coagulated in the cell by a simple constitution, retaining necessary sufficient water in a solid polymer film, reducing production cost, and keeping high cell performance over a long period of time.

**SOLUTION:** An anode 3 and a cathode 4 are arranged in a unit cell 1, and a solid polymer film 2 is arranged between the anode 3 and the cathode 4. A porous carbon flat plate 3 (b) of the anode 3 is formed, to pass fuel respectively, and a porous carbon flat plate 4(b) of the cathode 4 is formed to pass an oxidizing agent. The unit cell 1 is interposed between both-surface flat separators 7 with no reaction gas supply grooves 3(c), 4(c) formed thereon.



## LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 19.08.2002

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number] 3559693

[Date of registration] 28.05.2004

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平11-135132

(43)公開日 平成11年(1999) 5月21日

(51)Int.Cl.<sup>6</sup>

H 0 1 M 4/86  
8/10

識別記号

F I

H 0 1 M 4/86  
8/10

H

審査請求 未請求 請求項の数12 O L (全 11 頁)

(21)出願番号 特願平9-295545

(22)出願日 平成9年(1997)10月28日

(71)出願人 000003078

株式会社東芝

神奈川県川崎市幸区堀川町72番地

(72)発明者 小上 泰司

神奈川県川崎市川崎区浮島町2番1号 株  
式会社東芝浜川崎工場内

(72)発明者 齊藤 和夫

神奈川県川崎市川崎区浮島町2番1号 株  
式会社東芝浜川崎工場内

(72)発明者 知沢 洋

神奈川県川崎市川崎区浮島町2番1号 株  
式会社東芝浜川崎工場内

(74)代理人 弁理士 木内 光春

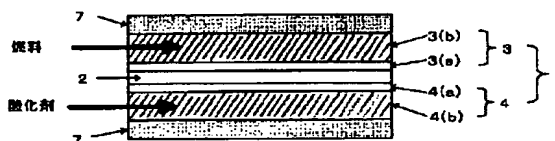
最終頁に続く

(54)【発明の名称】 固体高分子電解質型燃料電池

(57)【要約】

【課題】 簡単な構成により電池内に凝集した過剰の水  
分を速やか且つ安全に除去すると同時に、固体高分子膜  
に必要な水を保持することができ、製造コストの低  
減化を図りつつ高い電池特性を長期にわたって維持する  
ことが可能な優れた固体高分子電解質型燃料電池を提供  
する。

【解決手段】 単電池1にはアノード電極3およびカソ  
ード電極4が設けられ、これら電極3、4間には固体高  
分子膜2が配置されている。また、アノード電極3の多  
孔質カーボン平板3(b)は燃料を、カソード電極4の  
多孔質カーボン平板4(b)は酸化剤を、それぞれ流通  
するように構成されている。さらに、単電池1は反応ガ  
ス供給用の溝3(c)、4(c)を形成していない両面  
平板セパレータ7により挟まれている。



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 反応ガスが供給される一対の電極を備えると共にこれら電極間に電解質層としてイオン導電性を有する固体高分子膜を配置した単電池が設けられ、前記電極はそれぞれ触媒層および多孔質カーボン平板から構成され、前記単電池を挟むようにしてガス不透過性のセパレータが設置された固体高分子電解質型燃料電池において、

前記一対の電極のうち少なくとも一方の電極における多孔質カーボン平板は、前記反応ガスが流通するよう構成されたことを特徴とする固体高分子電解質型燃料電池。

【請求項2】 前記反応ガスが流通する多孔質カーボン平板に撥水処理が施されたことを特徴とする請求項1記載の固体高分子電解質型燃料電池。

【請求項3】 前記反応ガスが流通する多孔質カーボン平板は2枚以上重ね合わせられて構成され、これら多孔質カーボン平板のうち少なくとも前記触媒層に接する多孔質カーボン平板には撥水処理が施され、それ以外の多孔質カーボン平板には親水処理が施されたことを特徴とする請求項1記載の固体高分子電解質型燃料電池。

【請求項4】 前記反応ガスが流通する多孔質カーボン平板は2枚以上重ね合わせられて構成され、これら多孔質カーボン平板のうち少なくとも前記触媒層に接する多孔質カーボン平板には撥水処理が施され、それ以外の多孔質カーボン平板には親水性の微粉末が含浸処理されたことを特徴とする請求項1記載の固体高分子電解質型燃料電池。

【請求項5】 前記反応ガスが流通する多孔質カーボン平板は2枚以上重ね合わせられて構成され、これら多孔質カーボン平板のうち少なくとも前記触媒層に接する多孔質カーボン平板には撥水処理が施され、それ以外の多孔質カーボン平板については前記反応ガスの入口側に親水処理が施され、且つ前記反応ガスの出口側に撥水処理が施されたことを特徴とする請求項1記載の固体高分子電解質型燃料電池。

【請求項6】 前記反応ガスが流通する多孔質カーボン平板には粗密分布が付けられたことを特徴とする請求項1、2、3、4または5記載の固体高分子電解質型燃料電池。

【請求項7】 前記粗密分布が前記反応ガスの流通方向に付けられたことを特徴とする請求項6記載の固体高分子電解質型燃料電池。

【請求項8】 前記粗密分布が前記反応ガスの流通方向と垂直な方向に付けられたことを特徴とする請求項6記載の固体高分子電解質型燃料電池。

【請求項9】 前記セパレータが少なくとも一面に前記反応ガスの流通溝を形成しない平板セパレータから構成されたことを特徴とする請求項1、2、3、4、5、6、7または8記載の固体高分子電解質型燃料電池。

【請求項10】 前記平板セパレータにおける前記反応ガスの流通溝を形成しない面には前記反応ガスを供給および排出するためのヘッダが形成されたことを特徴とする請求項9記載の固体高分子電解質型燃料電池。

【請求項11】 反応ガスとして燃料が供給されるアノード電極および反応ガスとして酸化剤が供給されるカソード電極を備えると共に、これらアノード電極およびカソード電極間に電解質層としてイオン導電性を有する固体高分子膜を配置した単電池が設けられ、前記アノード電極および前記カソード電極はそれぞれ触媒層および多孔質カーボン平板から構成され、前記単電池を挟むようにしてガス不透過性のセパレータが設置された固体高分子電解質型燃料電池において、前記アノード電極における多孔質カーボン平板は2枚以上重ね合わせられて構成され、

これら前記アノード電極の多孔質カーボン平板のうち少なくとも前記触媒層に接する多孔質カーボン平板には親水処理が施され、それ以外の多孔質カーボン平板には撥水処理が施されたことを特徴とする固体高分子電解質型燃料電池。

【請求項12】 反応ガスとして燃料が供給されるアノード電極および反応ガスとして酸化剤が供給されるカソード電極を備えると共に、これらアノード電極およびカソード電極間に電解質層としてイオン導電性を有する固体高分子膜を配置した単電池が設けられ、前記アノード電極および前記カソード電極はそれぞれ触媒層および多孔質カーボン平板から構成され、前記単電池を挟むようにしてガス不透過性のセパレータが設置された固体高分子電解質型燃料電池において、

前記カソード電極における多孔質カーボン平板は2枚以上重ね合わせられて構成され、これらカソード電極の多孔質カーボン平板のうち少なくとも前記触媒層に接する多孔質カーボン平板には撥水処理が施され、それ以外の多孔質カーボン平板には親水処理が施されたことを特徴とする固体高分子電解質型燃料電池。

## 【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、固体高分子膜を電解質として用いた固体高分子電解質型燃料電池に係り、特に、電池内に凝集された水を除去するよう構成された固体高分子電解質型燃料電池に関するものである。

【0002】

【従来の技術】一般に、燃料電池は水素などの燃料と空気などの酸化剤という2種類のガスを電気化学的に反応させることにより、燃料のもつ化学的エネルギーを直接、電気エネルギーに変換する装置である。この燃料電池には様々なタイプのものが提案されているが、その1つとして、電解質に固体高分子膜を用いた固体高分子電解質型燃料電池が知られている。ここで図10を参照し

て、固体高分子電解質型燃料電池の構成について具体的に説明する。

【0003】図10に示すように、固体高分子電解質型燃料電池には単電池1が設けられ、この単電池1を挟むようにしてガス不透過性のセパレータ5、5が設置されている。単電池1には燃料として水素が供給されるアノード電極3と、酸化剤として空気が供給されるカソード電極4とが設けられ、これらアノード電極3およびカソード電極4間には電解質層としてプロトン導電性を有する固体高分子膜2が配置されている。

【0004】また、セパレータ5の下面にはアノード電極3に燃料を供給するための溝3(c)が形成され、セパレータ5の上面にはカソード電極4に酸化剤を供給するための溝4(c)が形成されている。なお、アノード電極3はアノード触媒層3(a)とアノード多孔質カーボン平板3(b)とから構成され、カソード電極4はカソード触媒層4(a)とカソード多孔質カーボン平板4(b)とから構成されている。このうち、触媒層3(a)、4(a)の方が前記固体高分子膜2を挟むよう\*

アノード反応 :  $H_2 \rightarrow 2H^+ + 2e^-$

カソード反応 :  $2H^+ + 1/2 O_2 + 2e^- \rightarrow H_2 O$

となる。なお、カソード電極4にて生成された水は未反応ガスと共に電池外に排出される。

【0007】上記のようにして得られる単電池1の起電力は1V以下と低い。そのため、実際に運転する燃料電池では、上記セパレータ5を介して数十〜数百枚の単電池1を積層し電池スタックとして使用している。その際、電池スタックにおいては発電に伴う電池スタックの昇温を制御するために数枚の単電池1毎に冷却板が挿入されるのが一般的である。

【0008】ところで、プロトン導電性を有する固体高分子膜2としては、たとえばプロトン交換膜であるパーフルオロカーボンスルホン酸(ナフィオン<sup>®</sup> : 米国、デュポン社)が知られている。このような固体高分子膜2は分子中に水素イオンの交換基を持ち、飽和含水状態とすることにより、イオン導電性電解質として機能すると共に、燃料(水素)と酸化剤(空気)とを分離する機能も発揮することができる。しかし、固体高分子膜2中の含水量が少なくなるとイオン抵抗が高くなり、燃料(水素)と酸化剤(空気)の混合(クロスオーバー)が発生して、発電性能が著しく劣化する。このため、固体高分子膜2は常に飽和含水状態としておくことが望ましいとされている。

【0009】しかしながら、アノード電極3で分離した水素イオンが固体高分子膜2を通してカソード電極4に移動する時、水も一緒に移動するため、アノード電極3側の固体高分子膜2は乾燥し易いことが判明している。また、供給する反応ガス中に含まれる水蒸気が少なければ、単電池1の反応ガスの入口付近では固体高分子膜2が乾燥傾向になる。このような固体高分子膜2の乾燥を

\*になっている。

【0005】以上のような構成を有する固体高分子電解質型燃料電池において、セパレータ5の溝3(c)からアノード電極3に燃料を、セパレータ5の溝4(c)からカソード電極4に酸化剤をそれぞれ供給すると、単電池1の一对の電極間で電気化学反応により起電力が生じる。より詳細には、アノード電極3に水素を、カソード電極4に空気をそれぞれ供給すると、アノード電極3では供給された水素がアノード電極3の触媒層3(a)で水素イオンと電子とに解離し、水素イオンは固体高分子膜2を通して、電子は外部回路を通して、カソード電極4にそれぞれ移動する。

【0006】一方、カソード電極4では供給された空気中の酸素と、固体高分子膜2を通過した上記水素イオンと、外部回路を經由した電子とがカソード触媒層4(a)で反応して水を生成する。このとき、外部回路を通った電子は電流となり、電力を供給することができる。このように進行する各電極3、4での反応を式で示すと、次のようになる。すなわち、

防止するために固体高分子電解質型燃料電池では、予め加湿した反応ガスを電極に対して供給することが一般的に行われている。通常、反応ガスの加湿は電池運転温度(60℃〜90℃)での相対湿度が100%となるように設定されている。

【0010】ところが、カソード電極4側では発電反応に伴って反応生成水が発生するため、固体高分子膜2の乾燥を防ぐことを目的として燃料および酸化剤を加湿している場合、カソード電極4側の触媒層4(a)には過剰の水蒸気が凝集して凝集水が発生し、カソード電極4内に過剰な水分が蓄積されることがあった。触媒層4(a)にて凝集水が生じると、触媒層4(a)への酸化剤の拡散を阻害することになり、拡散分極の増大を招く原因となった。拡散分極が進行すれば、電池特性が劣化し、電池の寿命が短くなるといった不具合が生じた。

【0011】そこで従来より、固体高分子電解質型燃料電池においては電池内に凝集された水を除去するよう改良されている。具体的には、セパレータ5における反応ガス供給用の溝3(c)、4(c)をサーペンタイン構造の1本溝とするなど、溝3(c)、4(c)の構造に改善して反応ガスの流速を大きくした固体高分子電解質型燃料電池が提案されている。このような燃料電池によれば、反応ガスのガス圧力を強めることができるため、凝集水をカソード電極4側の触媒層4(a)から電池外へと吹き飛ばすことができた。

【0012】

【発明が解決しようとする課題】しかしながら、反応ガス的高速化により凝集水の除去を図った上記従来例には次のような問題点があった。すなわち、反応ガスの流速

を高めるためには、セパレータ5に形成する溝3(c)、4(c)の断面積を小さくする必要があり、その分だけ溝3(c)、4(c)の数が増えて、セパレータ5の形状も複雑になった。したがって、溝加工に要する費用が高くなり、セパレータ5の製造コストが高騰した。その結果、燃料電池の製造コストが大きく跳ね上がっていた。

【0013】また、従来例では溝3(c)、4(c)の構造を工夫して反応ガス的高速化を図っているため、セパレータ5における溝3(c)、4(c)中の凝集水は除去し易いが、カソード電極4側の触媒層4(a)や多孔質カーボン平板4(b)に至っては蓄積した過剰な水を十分に除去することは困難であった。

【0014】さらに、反応ガスの流速を大きくすればするほどガス流の圧損は高くなり、場合によっては固体高分子膜2の破損を招くおそれがあった。しかも、反応ガスの流速を速すぎると、固体高分子膜2に必要な水までも除去してしまい、必要十分な水分を固体高分子膜2に確保できない。前述したように、固体高分子膜2中の含水量が少なくなるとイオン抵抗が高くなるため、固体高分子膜2中の含水量の変動は電池の内部抵抗が不安定となる原因となった。

【0015】以上述べたように、触媒層へのガス拡散をスムーズに行うために電池内の凝集水を除去することは不可欠であるが、これを簡単な構成により低コストで実現させることが課題となっていた。また、ただ単に電池内の凝集水を除去すれば良いというのではなく、安全性や電池性能の安定化といった観点から、固体高分子膜を破損させることなく凝集水を除去すると共に、固体高分子膜は常に飽和含水状態とすることが求められていた。

【0016】本発明は、以上のような事情を鑑みて提案されたものであり、その目的は、簡単な構成により電池内に凝集した過剰の水分を速やか且つ安全に除去すると同時に、固体高分子膜に必要十分な水を保持することができ、製造コストの低減化を図りつつ、高い電池特性を長期にわたって維持することが可能な優れた固体高分子電解質型燃料電池を提供することである。

【0017】

【課題を解決するための手段】上記課題を解決するために、請求項1の発明は、反応ガスが供給される一対の電極を備えと共にこれら電極間に電解質層としてイオン導電性を有する固体高分子膜を配置した単電池が設けられ、前記電極はそれぞれ触媒層および多孔質カーボン平板から構成され、前記単電池を挟むようにしてガス不透過性のセパレータが設置された固体高分子電解質型燃料電池において、前記一対の電極のうち少なくとも一方の電極における多孔質カーボン平板は、前記反応ガスが流通するよう構成されたことを特徴とする。

【0018】上記構成を有する請求項1の発明では、多孔質カーボン平板内に流通する反応ガスの圧力により、

多孔質カーボン平板に凝集した水を速やかに電池外に押し出すことが可能となる。したがって従来のように、反応ガスの流速を高めるための溝をセパレータに加工する必要が無い。これにより、セパレータの加工費用を抑えることができ、燃料電池の製造コストを大幅に削減することができる。

【0019】また、反応ガスの流速を高めるわけではなく、ガス流の圧損は小さく、固体高分子膜を破損させる心配がなく、且つ固体高分子膜の含水量が低下するおそれがない。したがって、優れた安全性を確保すると同時に、固体高分子膜を常に飽和含水状態を保持でき、安定した電池性能を長期にわたって維持することが可能となる。

【0020】請求項2の発明は、請求項1記載の固体高分子電解質型燃料電池において、前記反応ガスが流通する多孔質カーボン平板に撥水処理が施されたことを特徴とする。

【0021】このような請求項2の発明においては、多孔質カーボン平板に撥水処理を施すことにより、多孔質カーボン平板に凝集した水がカーボン繊維に付着することなく、気孔内に水滴として存在することになる。そのため、多孔質カーボン平板に流通する反応ガスの圧力により容易に電池外に押し出すことができる。したがって、触媒層への反応ガスの拡散をスムーズに行って拡散分極を抑えることができ、電池特性の低下を防止することができる。

【0022】請求項3の発明は、請求項1記載の固体高分子電解質型燃料電池において、前記反応ガスが流通する多孔質カーボン平板は2枚以上重ね合わせられて構成され、これら多孔質カーボン平板のうち少なくとも前記触媒層に接する多孔質カーボン平板には撥水処理が施され、それ以外の多孔質カーボン平板には親水処理が施されたことを特徴としている。

【0023】請求項4の発明は、請求項1記載の固体高分子電解質型燃料電池において、前記反応ガスが流通する多孔質カーボン平板は2枚以上重ね合わせられて構成され、これら多孔質カーボン平板のうち少なくとも前記触媒層に接する多孔質カーボン平板には撥水処理が施され、それ以外の多孔質カーボン平板には親水性の微粉末が含浸処理されたことを特徴とする。

【0024】上記のような請求項3、4の発明では、少なくとも触媒層に接する多孔質カーボン平板には撥水処理を施すので、触媒層に接する多孔質カーボン平板内の凝集水を電池外へと簡単に除去することができる。また、撥水処理を施していない多孔質カーボン平板は親水性を有するため、該多孔質カーボン平板は比較的濡れ易く、凝集水を十分に吸収することができる。

【0025】通常、反応ガス出口側では発電反応により水が生成することから過剰の水蒸気が凝集するが、この凝集水が多孔質カーボン平板に吸収されることになる。

吸収された水はウィッキング作用により反応ガス出口側に移動して蒸発することになる。このような現象により、反応ガス入口側では固体高分子膜に含まれる水の蒸発を防止することができる。したがって、固体高分子膜は常に飽和含水状態を保持可能であり、イオン抵抗が上昇することがなく、電池の内部抵抗を安定させることができる。

【0026】特に、請求項4の発明では、多孔質カーボン平板に親水性微粉末を含浸処理するので、優れた凝集水の吸収力を発揮することができる。しかも、十分に凝集水を吸収した多孔質カーボン平板では反応ガスが流れ難くなる。そのため、撥水处理を施した側の多孔質カーボン平板内では反応ガスの流速を大きくすることができる。したがって、請求項4の発明においては流通する反応ガスのガス圧力が増大し、触媒層に接する多孔質カーボン平板から確実に凝集水を押し出すことが可能である。

【0027】請求項5の発明は、請求項1記載の固体高分子電解質型燃料電池において、前記反応ガスが流通する多孔質カーボン平板は2枚以上重ね合わせられて構成され、これら多孔質カーボン平板のうち少なくとも前記触媒層に接する多孔質カーボン平板には撥水处理が施され、それ以外の多孔質カーボン平板については前記反応ガスの入口側に親水处理が施され、且つ前記反応ガスの出口側に撥水处理が施されたことを特徴とする。

【0028】以上のような請求項5の発明においては、上記請求項3、4の発明と同様、少なくとも触媒層に接する多孔質カーボン平板には撥水处理を施しているため、触媒層に接する多孔質カーボン平板内の凝集水を簡単に除去することができる。また、前記以外の多孔質カーボン平板では反応ガス入口側を親水处理することにより電池内の過剰の凝集水を吸収でき、反応ガス中の相対湿度が比較的低い反応ガス入口側では固体高分子膜に含まれる水の蒸発を防止することができる。また、このような多孔質カーボン平板は反応ガス出口側を撥水处理しているので、反応ガスの上流から押し出されてきた凝集水を速やかに電池外に排出することができる。

【0029】請求項6の発明は、請求項1、2、3、4または5記載の固体高分子電解質型燃料電池において、前記反応ガスが流通する多孔質カーボン平板には粗密分布が付けられたことを特徴とする。

【0030】請求項7の発明は、請求項6記載の固体高分子電解質型燃料電池において、前記粗密分布が前記反応ガスの流通方向に付けられたことを特徴とする。

【0031】請求項8の発明は、請求項6記載の固体高分子電解質型燃料電池において、前記粗密分布が前記反応ガスの流通方向と垂直な方向に付けられたことを特徴とする。

【0032】このような請求項6、7、8の発明では、反応ガスが流通する多孔質カーボン平板に粗密をつける

ことにより、多孔質カーボン平板内を流通する反応ガスは粗の部分を通ることになるので、ガス配流の均一化が容易となる。

【0033】特に、請求項7の発明では多孔質カーボン平板において反応ガス流通方向に粗密分布をつけたため、反応ガスは上流から下流に向かって直線的に流通するようになり局部的な反応ガスの滞留を防止することができる。

【0034】また、請求項8の発明では、多孔質カーボン平板において反応ガス流通方向と垂直に粗密をつけたため、反応ガスは流通方向と垂直な方向に広がりながら上流から下流に均等に流れるようになり、局部的な反応ガスの滞留を防止することができる。

【0035】請求項9の発明は、請求項1、2、3、4、5、6、7または8記載の固体高分子電解質型燃料電池において、前記セパレータが少なくとも一面に前記反応ガスの流通溝を形成しない平板セパレータから構成されたことを特徴とする。

【0036】請求項10の発明は、請求項9記載の固体高分子電解質型燃料電池において、前記平板セパレータにおける前記反応ガスの流通溝を形成しない面には前記反応ガスを供給および排出するためのヘッダが形成されたことを特徴とする。

【0037】このような請求項9、10の発明では、従来形成していた反応ガスの流通溝を少なくとも一面には形成しない平板セパレータを用いているので、溝の加工費用を削減することができ、セパレータの大幅なコストダウンが実現する。

【0038】しかも、請求項10の発明では、反応ガスの流通溝を形成しない面に反応ガスを供給および排出するためのヘッダを設けたため、これらのヘッダが多孔質カーボン平板に線で反応ガスを供給または排出することができる。したがって、局部的な反応ガスの滞留を生じさせることがなく、小さな圧損で均等に反応ガスを多孔質カーボン平板内に流通させることが可能となる。

【0039】請求項11の発明は、反応ガスとして燃料が供給されるアノード電極および反応ガスとして酸化剤が供給されるカソード電極を備え、これらアノード電極およびカソード電極間に電解質層としてイオン導電性を有する固体高分子膜を配置した単電池が設けられ、前記アノード電極および前記カソード電極はそれぞれ触媒層および多孔質カーボン平板から構成され、前記単電池を挟むようにガス不透過性のセパレータが設置された固体高分子電解質型燃料電池において、前記アノード電極における多孔質カーボン平板は2枚以上重ね合わせられて構成され、これら前記アノード電極の多孔質カーボン平板のうち少なくとも前記触媒層に接する多孔質カーボン平板には親水处理が施され、それ以外の多孔質カーボン平板には撥水处理が施されたことを特徴とする。

【0040】以上のような構成を有する請求項11の発明では、アノード電極の多孔質カーボン平板のうち少なくとも触媒層に接する多孔質カーボン平板を親水処理した上で、それ以外の多孔質カーボン平板を撥水処理しているため、親水処理を施した多孔質カーボン平板は反応ガスである燃料中の水分を確実に吸収することができる。したがって、アノード電極の触媒層は乾燥することがなく、アノード電極側の固体高分子膜に対して十分な量の水分を供給することが可能となる。この結果、固体高分子膜は常に飽和含水状態を保つことができ、イオン抵抗の上昇を抑えて電池内部抵抗の安定化を図ることができる。

【0041】請求項12の発明は、反応ガスとして燃料が供給されるアノード電極および反応ガスとして酸化剤が供給されるカソード電極を備えると共に、これらアノード電極およびカソード電極間に電解質層としてイオン導電性を有する固体高分子膜を配置した単電池が設けられ、前記アノード電極および前記カソード電極はそれぞれ触媒層および多孔質カーボン平板から構成され、前記単電池を挟むようにガス不透過性のセパレータが設置された固体高分子電解質型燃料電池において、前記カソード電極における多孔質カーボン平板は2枚以上重ね合わせられて構成され、これらカソード電極の多孔質カーボン平板のうち少なくとも前記触媒層に接する多孔質カーボン平板には撥水処理が施され、それ以外の多孔質カーボン平板には親水処理が施されたことを特徴とする。

【0042】上記の構成を有する請求項12の発明では、カソード電極の多孔質カーボン平板のうち少なくとも触媒層に接する多孔質カーボン平板を撥水処理しているため、撥水処理した多孔質カーボン平板から発電反応にて生じた生成水を電池外へと容易に排出することができる。したがって、触媒層への反応ガスの拡散を確実に行うことができ、拡散分極を防いで、高い電池性能を長期にわたって維持することが可能となる。

【0043】また、反応ガス出口側では発電反応により水が生成することから過剰の水蒸気は凝集するが、親水処理された多孔質カーボン平板はこれを吸収することができる。吸収された水はウィッキング作用により反応ガス出口側に移動して蒸発することになる。このような現象により、反応ガス入口側では固体高分子膜に含まれる水の蒸発を防止することができる。したがって、固体高分子膜は常に飽和含水状態を保持でき、イオン抵抗の上昇を防止して、電池の内部抵抗は安定する。

【0044】

【発明の実施の形態】以下、本発明の実施の形態について図面を用いて具体的に説明する。なお、図10に示した従来例と同一の部材に関しては同一符号を付し、説明は省略する。

【0045】(1) 第1の実施形態

【構成】第1の実施形態は請求項1および9の発明に包

含するものであり、図1は第1の実施形態を模式化して示した側面断面図である。

【0046】図1に示すように、第1の実施形態の単電池1は、従来例と同様、アノード電極3およびカソード電極4を備えると共にこれら電極3、4間に固体高分子膜2を配置してなるが、アノード電極3の多孔質カーボン平板3(b)は反応ガスである燃料を、カソード電極4の多孔質カーボン平板4(b)は反応ガスである酸化剤を、それぞれ流通するように構成されている。また、単電池1はガス不透過性の両面平板セパレータ7により挟まれるが、この両面平板セパレータ7は従来のセパレータ5と異なり、両面とも反応ガス供給用の溝3(c)、4(c)が形成されていない点に特徴がある。

【0047】【作用効果】上記の構成を有する第1の実施形態では、両面平板セパレータ7には両面とも反応ガス供給用の溝(c)、4(c)を加工する必要がない。そのため、加工を簡略化することができ、その製造コストを従来のセパレータ5と比べて6割程度とすることができた。したがって、燃料電池の大幅なコストダウンを実現することができた。

【0048】また、第1の実施形態では、具体的なデータとして、電池電圧が従来の電池と比較して10%程度向上し、5000時間電池特性が安定して運転できることを確認した。このような性能の向上は、多孔質カーボン平板3(b)、4(b)に反応ガスを流通させることで、多孔質カーボン平板(b)、4(b)内および触媒層3(a)、4(a)内に凝縮した水を反応ガスの圧力により速やかに電池外に押し出すことができるためである。

【0049】しかも、多孔質カーボン平板(b)、4(b)内を流通する反応ガスの流速は特別に速くしたわけではないので、ガス流の圧損は小さく、固体高分子膜2を破損させる心配はない。また、反応ガスの流速が速すぎて固体高分子膜2から必要以上に水を奪うこともない。したがって、電池内での凝集水の蓄積を防止できると同時に、固体高分子膜には必要十分な水を保持することができる。この結果、長期にわたり安定した電池性能を維持することができる。

【0050】なお、第1の実施形態では、アノード電極3およびカソード電極4のどちらの多孔質カーボン平板3(b)、4(b)も反応ガス流通構造としているが、一方の電極における多孔質カーボン平板だけをこのような構造としても、効果があがることは明白である。

【0051】(2) 第2の実施形態

【構成】第2の実施形態は請求項2の発明に対応するものであるが、その基本構成は第1の実施形態と同様であるため、図1を用いて説明する。第2の実施形態の構成上の特徴は、酸化剤が流通するカソード電極4の多孔質カーボン平板4(b)に対しフッ素樹脂により撥水処理が施されたことにある。



【0052】〔作用効果〕このような第2の実施形態においては、多孔質カーボン平板4(b)に撥水处理を施すことにより、多孔質カーボン平板4(b)に凝集した水はカーボン繊維に付着することなく気孔内に水滴として存在することになり、流通する反応ガスにより容易に電池外に押し出すことができる。このことにより、電池内の圧損を低く抑えることができ、かつ触媒層4(a)への反応ガスの拡散が容易となり、電池内に蓄積した水による性能低下を防止することができた。この結果、電池特性を長期にわたり安定させることができた。具体的には、第2の実施形態を6000時間程度運転して電池電圧が数mV低下するに過ぎなかった。

【0053】(3)第3の実施形態

〔構成〕第3の実施形態は請求項3の発明に対応するものであり、図2は第3の実施形態を模式化して示した側面断面図である。

【0054】図2に示すように、第3の実施形態の単電池1は片面平板セパレータ6に挟まれている。片面平板セパレータ6とは片面にのみガス供給溝を形成したものである。図中の符号3cは片面平板セパレータ6に形成される燃料供給溝である。また、酸化剤が流通するカソード電極4の多孔質カーボン平板4(b)は、2枚の多孔質カーボン平板8、9から構成されている。これらの多孔質カーボン平板8、9のうち、触媒層4(a)に接する側の多孔質カーボン平板8には撥水处理が施され、もう一方の片面平板セパレータ6に接する側の多孔質カーボン平板9には親水处理が施されている。なお、片面平板セパレータ6は多孔質カーボン平板9に対し、溝が形成されない平面側で接するように配置されている。

【0055】〔作用効果〕上記のような第2の実施形態明では、触媒層4(a)に接する多孔質カーボン平板8には撥水处理を施したので、多孔質カーボン平板8内の凝集水を電池外へと簡単に除去することができる。また、片面平板セパレータ6に接する多孔質カーボン平板9は親水处理をしてあるため、比較的濡れ易く、凝集水を十分に吸収可能である。反応ガス出口側で多孔質カーボン平板9に吸収された凝集水はウィッキング作用により反応ガス出口に移動して蒸発することになる。

【0056】この現象により、電池の反応ガス入口側では固体高分子膜2に含まれる水の蒸発を防止することができ、固体高分子膜2におけるイオン抵抗の上昇を抑えて電池特性の安定化を図ることができた。具体的には、前記第2の実施形態と同じように、6000時間程度運転して電池電圧の低下が数mV程度であった。

【0057】(4)第4の実施形態

〔構成〕第4の実施形態は請求項4の発明に対応するものであり、図3は第4の実施形態を模式化して示した側面断面図である。

【0058】図3に示すように第4の実施形態では、第3の実施形態での多孔質カーボン平板9(触媒層4

(a)に接する側)に代えて、多孔質カーボン平板10を備えたことを特徴としている。多孔質カーボン平板10とは親水性である炭化珪素微粉末が含浸処理されたものである。この点以外の構成は上記第3の実施形態と同じである。

【0059】〔作用効果〕以上のような構成を有する第4の実施形態には、第3の実施形態に加えて次のような作用効果がある。すなわち、親水性微粉末を含浸処理した多孔質カーボン平板10は優れた吸水力を発揮できる。凝集水を多量に吸収した多孔質カーボン平板10では酸化剤が流れ難くなるため、撥水处理を施した側の多孔質カーボン平板8では相対的に酸化剤の流速を大きくすることができる。したがって、第4の実施形態の多孔質カーボン平板8においては流通する酸化剤のガス圧力が増大し、多孔質カーボン平板8から確実に凝集水を押し出すことが可能となる。

【0060】(5)第5の実施形態

〔構成〕第5の実施形態は請求項5の発明に対応するものであり、図4は第5の実施形態を模式化して示した側面断面図である。

【0061】図4に示すように第5の実施形態では、第3の実施形態での多孔質カーボン平板9(触媒層4

(a)に接する側)に代えて多孔質カーボン平板11を備えたことを特徴としている。多孔質カーボン平板11は酸化剤の入口側から半分を越えた程度に親水处理が施され、酸化剤の出口側付近に撥水处理が施された多孔質カーボン平板である。

【0062】〔作用効果〕以上のような第5の実施形態においては、上記第3および第4の実施形態と同じく、多孔質カーボン平板4(b)を構成する2枚の多孔質カーボン平板のうち、触媒層4(a)に接する側の多孔質カーボン平板8に撥水处理を施したので、多孔質カーボン平板8内の凝集水を簡単に除去することができる。また、多孔質カーボン平板4(b)を構成するもう一方の多孔質カーボン平板11では、酸化剤の入口側を親水处理したので電池内の過剰の凝集水を吸収できる。

【0063】反応ガスは出口側に比べて入口側の方が相対湿度が低いので、多孔質カーボン平板11の酸化剤入口側を親水处理したことで、固体高分子膜2の反応ガス入口側付近での水分の蒸発を防止することができる。したがって、固体高分子膜2は常に飽和含水状態を維持でき、含水量低下に伴うイオン抵抗の上昇を抑えて電池特性の安定化を図ることができた。具体的には、第5の実施形態を5000時間程度運転して数mV程度、電池電圧が低下するだけである。

【0064】(6)第6の実施形態

〔構成〕第6の実施形態は請求項7の発明に対応するもので、図5は第6の実施形態の多孔質カーボン平板12の平面図を示している。第6の実施形態は、反応ガスが流通する多孔質カーボン平板12が設けられ、この多孔

質カーボン平板12において反応ガスの流通方向に沿って高密度部と低密度部とが短冊状に交互に重ねられることにより粗密分布が付けられた点を特徴としている。

【0065】〔作用効果〕このような第6の実施形態によれば、反応ガスが流通する多孔質カーボン平板12において反応ガスの流通方向に粗密をつけたため、反応ガスは低密度部を流通することになり多孔質カーボン平板12内を上流から下流に向かって直線的に均等に流れることができる。したがって、多孔質カーボン平板12内では局所的な反応ガスの滞留が生じない。このような多孔質カーボン平板12を使用することにより電池内で電流密度が均等になり、安定して高い電池特性を獲得することができる。

【0066】(7) 第7の実施形態

〔構成〕第7の実施形態は請求項8の発明に対応するもので、図6は第7の実施形態の多孔質カーボン平板13の平面図を示している。第7の実施形態は、反応ガスが流通する多孔質カーボン平板13が設けられ、多孔質カーボン平板13において反応ガスの流通方向と垂直に粗密分布が付けられた点を特徴としている。より詳しくは多孔質カーボン平板13は、反応ガスの流通方向と垂直に高密度部と低密度部とが短冊状に交互に重ねられて構成されている。

【0067】〔作用効果〕このような第7の実施形態によれば、反応ガスが流通する多孔質カーボン平板13に流通方向と垂直に粗密をつけたため、反応ガスはその流通方向と垂直に広がりながら上流から下流へと均等に流れていく。したがって、局所的に反応ガスが滞留するといったことがない。これにより、前記第6の実施形態と同様、電池内での電流密度が均等になり、安定して高い電池特性を得ることができた。なお、多孔質カーボン平板内のガス配流を均一にする粗密パターンは上記の粗密パターン以外にも適宜選択可能である。

【0068】(8) 第8の実施形態

〔構成〕第8の実施形態は請求項10の発明に対応するもので、図7の(a)は第8の実施形態における平板セバレータ14の平面図、(b)は第8の実施形態における多孔質カーボン平板8、10および平板セバレータ14の模式化して示した側面断面図を示している。

【0069】第8の実施形態は、図3に示した第4の実施形態に改良を加えたものであり、撥水処理が施された多孔質カーボン平板8と、親水性である炭化珪素微粉末が含まれ処理された多孔質カーボン平板10とが設けられ、多孔質カーボン平板10には反応ガス流通溝を形成しない平板セバレータ14が配置されている。また、平板セバレータ14において反応ガスの流通溝を形成しない面に反応ガスを供給する供給ヘッダ15および反応ガスを排出する排出ヘッダ16が分離して形成されている。さらに、多孔質カーボン平板10にはヘッダ15、16に対応して反応ガス通過用のスリット10aが設け

られている。

【0070】〔作用効果〕以上のような構成を有する第8の実施形態において、平板セバレータ14には反応ガスの流通溝を形成しない面に反応ガスを供給および排出するヘッダ15、16を設けたので、これらのヘッダ15、16が多孔質カーボン平板8に対して線で反応ガスを供給および排出することができる。したがって、多孔質カーボン平板10のスリット10aを通過して、局所的な反応ガスの滞留を生じさせることがなく、小さな圧損で均等に多孔質カーボン平板8内へと反応ガスを流通させることが可能となる。具体的には、第8の実施形態では3000時間程度運転しても反応ガスのセル内圧損は非常に小さく、セル特性は極めて安定していた。

【0071】なお、第8の実施形態は内部マニホールド型の一例を示したものであるが、反応ガスを供給または排出するヘッダへのガス配給または排出する配管は電池に対して垂直方向に設けてもよい。また、外部マニホールドとしても同様の効果を得ることができる。さらに、ヘッダの形状や設置数などは本実施の形態に限ったものではなく、適宜変更可能である。

【0072】(9) 第9の実施形態

〔構成〕第9の実施形態は請求項11の発明に対応するもので、図8は第9の実施形態を模式化して示した側面断面図である。

【0073】図8に示すように、第9の実施形態では、燃料が流通するアノード電極3の多孔質カーボン平板3(b)が、2枚の多孔質カーボン平板8、9から構成されている。多孔質カーボン平板8、9は、図2に示した第3の実施形態のそれとは反対に、親水処理が施された多孔質カーボン平板9が触媒層3(a)に接し、撥水処理が施された多孔質カーボン平板8が片面平板セバレータ6に接するよう配置されている。なお、片面平板セバレータ6は多孔質カーボン平板8に対して溝が形成されない平面側で接するように配置されている。また、図中の符号4cは片面平板セバレータ6に形成される酸化剤供給溝である。

【0074】〔作用効果〕以上のような構成を有する第9の実施形態では、アノード電極3の多孔質カーボン平板3(b)を構成する2枚の多孔質カーボン平板のうち、触媒層3(a)に接する多孔質カーボン平板9を親水処理し、もう一方の多孔質カーボン平板8を撥水処理している。そのため、親水処理を施した多孔質カーボン平板9が燃料中の水分を確実に吸収することができる。したがって、水素イオンと共に水分が流出し易いアノード電極3の触媒層3(a)の乾燥を防ぐことができ、アノード電極3側の固体高分子膜2に対して十分な量の水分を供給することが可能となる。これにより、固体高分子膜2は常に飽和含水状態を保つことができ、イオン抵抗の上昇を抑えて電池内部抵抗の安定化を図ることができる。具体的な第9の実施形態のデータとしては、60

00時間程度運転して、電池電圧が従来の電池と比較して5%程度向上し、電池特性は安定して運転できることを確認することができた。

【0075】(10)第10の実施形態

【構成】第10の実施形態は請求項4、11および12の発明に包含するもので、図9は第10の実施形態を模式化して示した側面断面図である。

【0076】第10の実施形態は前記第9の実施形態のアノード電極3側の多孔質カーボン平板3(b)と、第4の実施形態のカソード電極4側の多孔質カーボン平板4(b)と、両面平板セパレータ7とを備えたことを特徴としている。すなわち、アノード電極3およびカソード電極4における多孔質カーボン平板3(b)、4

(b)は、それぞれ2枚の多孔質カーボン平板8、9および8、10から構成されており、多孔質カーボン平板8には撥水处理が施され、多孔質カーボン平板9、10には親水处理が施されている。

【0077】【作用効果】上記の構成を有する第10の実施形態では、前記第9の実施形態および第4の実施形態の持つ作用効果を合わせ持つことができる。すなわち、親水处理を施した多孔質カーボン平板9が燃料中の水分を確実に吸収し、アノード電極3の触媒層3(a)の乾燥を防いでアノード電極3側の固体高分子膜2に対して十分な量の水分を供給することが可能となる。これにより、固体高分子膜2は常に飽和含水状態を保ち、イオン抵抗の上昇を抑えて電池内部抵抗の安定化を図ることができる。また、カソード電極4では撥水处理された多孔質カーボン平板8が発電反応にて生じた生成水を電池外へと容易に排出することができる。したがって、触媒層4(a)への酸化剤の拡散を確実に行うことができ、拡散分極を防いで高い電池性能を長期にわたって維持することが可能となる。このような第10の実施形態によれば、8000時間程度運転して、電池電圧が従来の電池と比較して10%程度向上し、電池特性は極めて安定して運転できることを確認することができた。

【0078】

【発明の効果】以上説明した通り、本発明によれば、触媒層に接する多孔質カーボン平板に反応ガスを流通するという極めて簡単な構成により、電池内に凝集した過剰の水分を速やか且つ安全に除去すると同時に、固体高分子膜に必要十分な水を保持することができ、製造コストの低減化を図りつつ高い電池特性を長期にわたって維持することができた。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の第1の実施形態を模式化して示した側面断面図

【図2】本発明の第3の実施形態を模式化して示した側

面断面図

【図3】本発明の第4の実施形態を模式化して示した側面断面図

【図4】本発明の第5の実施形態を模式化して示した側面断面図

【図5】本発明の第6の実施形態の多孔質カーボン平板12の平面図

【図6】本発明の第7の実施形態の多孔質カーボン平板13の平面図

10 【図7】(a)は第8の実施形態における平板セパレータ14の平面図、(b)は第8の実施形態における多孔質カーボン平板8、10および平板セパレータ14の模式化して示した側面断面図

【図8】本発明の第9の実施形態を模式化して示した側面断面図

【図9】本発明の第10の実施形態を模式化して示した側面断面図

【図10】従来の固体高分子電解質型燃料電池を模式化して示した側面断面図

20 【符号の説明】

1…単電池

2…固体高分子膜

3…アノード電極

3(a)…アノード電極側の触媒層

3(b)…アノード電極側の多孔質カーボン平板

3(c)…燃料供給溝

4…カソード電極

4(a)…カソード電極側の触媒層

4(b)…カソード電極側の多孔質カーボン平板

30 4(c)…酸化剤供給溝

5…ガス供給溝付きのセパレータ

6…片面平板セパレータ

7…両面平板セパレータ

8…撥水处理した多孔質カーボン平板

9…親水处理した多孔質カーボン平板

10…親水性微粉末が含浸処理された多孔質カーボン平板

11…電池の反応ガス入口側は親水处理、出口側は親水处理した多孔質カーボン平板

40 12…反応ガス流通方向に粗密の分布をつけた多孔質カーボン平板

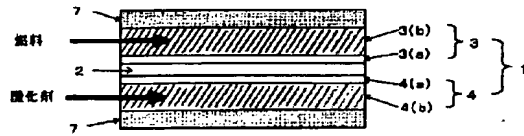
13…反応ガス流通方向と垂直に粗密の分布をつけた多孔質カーボン平板

14…ヘッダを設けたガス不透過性の平板セパレータ

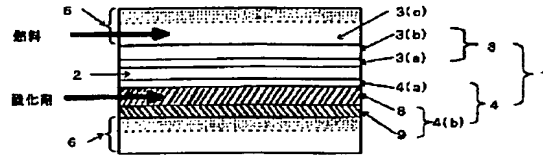
15…供給ヘッダ

16…排出ヘッダ

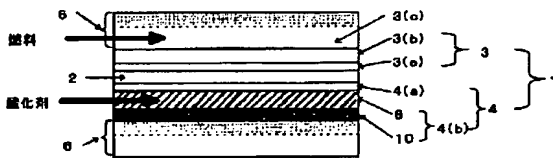
【図1】



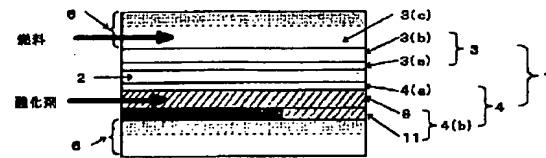
【図2】



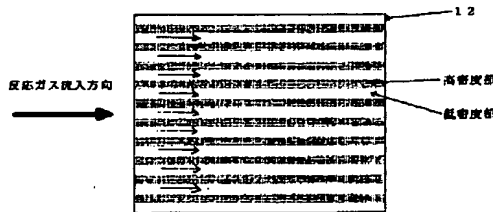
【図3】



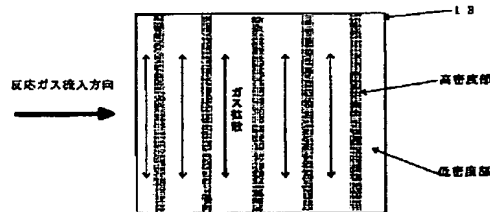
【図4】



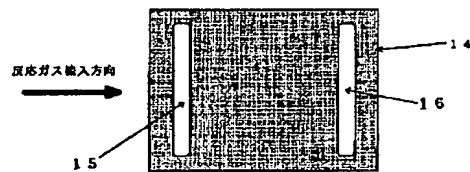
【図5】



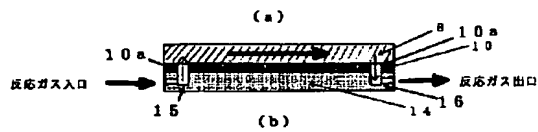
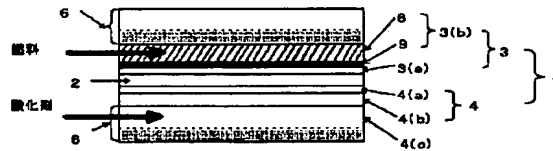
【図6】



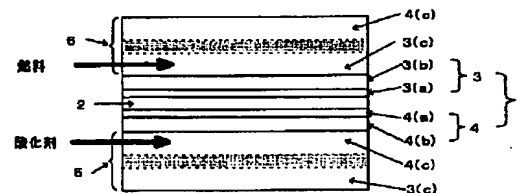
【図7】



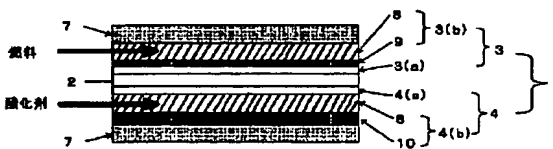
【図8】



【図10】



【図9】



フロントページの続き

(72)発明者 上野 三司

神奈川県川崎市川崎区浮島町2番1号 株  
式会社東芝浜川崎工場内